

## PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 61-063505

(43)Date of publication of application : 01.04.1986

(51)Int.Cl.

C01B 21/064

(21)Application number : 59-183854

(71)Applicant : MITSUI TOATSU CHEM INC

(22)Date of filing : 04.09.1984

(72)Inventor : MATSUDA FUJIO  
KATO KOZO

## (54) PRODUCTION OF HIGH-PURITY AMORPHOUS BORON NITRIDE FINE POWDER

## (57)Abstract:

PURPOSE: To produce high-purity amorphous boron nitride fine powder, by heating borax and melamine at a specific temperature to give a reaction product, and subjecting it to after-treatment under a specific condition.

CONSTITUTION: A mixture of 3 mol borax and  $\geq 2$  mol melamine is heated in an inert gas atmosphere at normal pressure or under pressure at 650W1,100° C (especially 750W1,000° C), to give a reaction product. The reaction product is washed with a diluted mineral acid such as 0.1W10wt% hydrochloric acid, sulfuric acid, nitric acid, etc. until pH of the washed solution becomes  $\leq 1$ , then washed with water until pH of the washed solution becomes 5W7, and dried to produce high-purity amorphous boron nitride fine powder.

## LEGAL STATUS

[Date of request for examination]

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of extinction of right]

BEST AVAILABLE COPY

⑨ 日本国特許庁(JP)

⑩ 特許出願公開

⑫ 公開特許公報(A)

昭61-63505

⑮ Int.Cl.<sup>4</sup>

識別記号

庁内整理番号

⑬ 公開 昭和61年(1986)4月1日

C 01 B 21/064

7508-4G

審査請求 未請求 発明の数 1 (全3頁)

⑭ 発明の名称 高純度非晶質窒化硼素微粉末の製造法

⑰ 特 願 昭59-183854

⑱ 出 願 昭59(1984)9月4日

⑲ 発 明 者 松 田 藤 夫 鎌倉市笛田1965-12

⑲ 発 明 者 加 藤 高 蔵 神奈川県足柄上郡大井町上大井544

⑲ 出 願 人 三井東圧化学株式会社 東京都千代田区霞が関3丁目2番5号

# 明 細 書

## 1. 発明の名称

高純度非晶質窒化硼素微粉末の製造法

## 2. 特許請求の範囲

(1) 硼砂とメラミンとの混合物を不活性ガス雰囲気中で650～1100℃に加熱した後、得られた反応生成物を、洗浄液のpHが1以下となるまで希硝酸で洗浄し、ついで、洗浄液のpHが5～7になるまで水洗することを特徴とする高純度非晶質窒化硼素微粉末の製造法。

(2) 希硝酸が希塩酸および/または希硫酸である特許請求範囲第1項記載の方法。

## 3. 発明の詳細な説明

(産業上の利用分野)

本発明は、高純度非晶質窒化硼素の微粉末の製造法に関する。さらに詳しくは、硼砂とメラミンとを反応させて非晶質窒化硼素微粉末を製造する方法の改良に関する。

(従来の技術)

窒化硼素はファイナセラムックスの一種であり、

大別して、非晶質窒化硼素、六方晶窒化硼素および立方晶窒化硼素がある。非晶質窒化硼素に関しては、従来法である無水硼酸をアンモニア中で還元窒化する方法により製造されるが、得られる非晶質窒化硼素の純度は約80%であり、不純物を多量に含んでいる。また粒度は0.05～0.5ミクロンである。そのため、従来の非晶質窒化硼素の用途は余りなく、さらに、高純度で安価な非晶質窒化硼素微粉末が望まれている。

(発明が解決しようとする問題点)

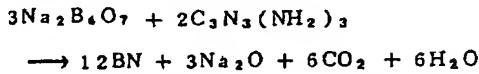
本発明の目的は高純度で安価な非晶質窒化硼素微粉末を製造することである。

(問題点を解決するための手段)

本発明者らは、上記目的に関して種々検討した結果、硼砂とメラミンとを反応させる方法において、反応条件を設定し、さらに得られた反応生成物の後処理方法を改良することにより、高純度非晶質窒化硼素微粉末が得られることを見出し、本発明の方法に到った。

本発明の方法は、硼砂とメラミンを原料として

反応させる。その反応は次式のように進行するものと考えられる。



使用される硼砂は無水物が最も望ましいが含水物であつても差し支えない。

硼砂およびメラミンの使用量は、すべての硼砂が窒化硼素に変化するためには、前記式に示すように、硼砂3モルに対して2モル以上のメラミンを使用するのが望ましい。しかし、とくに限定されるものではない。

反応は不活性ガス中、常圧または加圧下において実施される。不活性ガスとしては窒素、ヘリウム、アルゴン等があげられ、通常、窒素が用いられる。

本発明の方法においては、反応温度は650～1100℃、好ましくは750～1000℃の範囲である。650℃未満では反応速度が遅く、1100℃を越えると六方晶窒化硼素が生成するので好ましくない。

上記の反応による反応生成物は未反応原料およ

なるまで洗浄する。ついで、水洗をその洗浄液のpH 5～7になるまで行なう。

鉍酸による洗浄および水洗の方法は、とくに制限されることなく、それぞれの洗浄液が上記pH域となるように洗浄すればよい。例えば反応生成物を前記濃度の希鉍酸の水溶液中に懸濁させて、よくかきまぜた後、戸越し、必要に応じてさらに希鉍酸液でpHが1以下になるまで洗浄する。ついで、戸別し、戸塊そのまま、あるいは水に懸濁させて戸越し、洗浄液のpHが5～7となるまで水洗するような方法がある。

また、本発明においては、反応生成物を水洗後、乾燥してもよいが、水洗後さらに低沸点の有機溶剤たとえばメタノール、エタノール、イソプロピルアルコール、アセトン、メチルエチルケトン等で洗浄し、常圧乾燥または減圧乾燥すれば、高純度非晶質窒化硼素微粉末が収率良く得られる。

(作用および発明の効果)

硼砂とメラミンとを650～1100℃で加熱して得られた反応生成物を、希鉍酸でpH 1以下まで

び副生物を含有する。これらの未反応原料および副生物は大部分水に溶けるので、反応生成物を水洗、とくに温水または熱湯で洗浄するとかかなり精製された非晶質窒化硼素が得られる。しかしながら、純度は80～90%程度であり、まだ十分とは言えない。特に、副生物である酸化ナトリウムは強塩基性を示し、水洗のみでは十分除去することが困難である。

本発明の方法は、前記の反応条件により得られた反応生成物を以下のように処理するところに主たる特徴を有するものである。

すなわち、反応生成物を鉍酸を用いて洗浄し、しかる後に水洗して高純度の非晶質窒化硼素を得る。

用いられる鉍酸は、塩酸、硫酸、硝酸、りん酸等である。中でも塩酸または硫酸、あるいは両者の混合したものが良効な結果を与える。使用する鉍酸の濃度は0.1～10%、好ましくは1～5%である。

この様な鉍酸を用いて洗浄液のpHが1以下と

洗浄し、ついでpH 5～7まで水洗することにより、未反応原料および副生物をほぼ完全に除去することが可能で高純度の非晶質窒化硼素微粉末を得ることができる。

したがって、本発明の方法はとくに電子材料、耐火材料または潤滑剤として強く要望される高純度の非晶質窒化硼素微粉末を提供する方法として極めて優れたものである。

(実施例)

次に、実施例をあげて本発明を具体的に説明する。

#### 実施例1

内容280 ccの蓋つきのアルミナ製るつぼに、粉碎した無水硼砂 60.4 gおよびメラミン113.5 gの混合物を入れた後、そのるつぼを電気炉に入れ、電気炉中に毎分400 mlの割合で窒素ガスを流しながら、るつぼを電気炉で900℃で4時間加熱した。

反応後、窒素中で一晩放冷し、反応生成物をビーカー中に入れ、さらに5%塩酸をビーカー中の

の反応生成物に加え、洗浄とデカンテーションを繰り返し、洗浄液のpHを1以下とした後、約30分間攪拌し、デカンテーションの後、イオン交換水を加え、攪拌とデカンテーションを繰り返し、洗浄液のpHを6とした後、戸別した。さらに、沈澱物をメタノールで2回洗浄した後、減圧で100℃で2時間乾燥した結果、27.7gの白色粉末を得た。

この物質は赤外線分析、X線解析によつて、非晶質窒化硼素であることを確認した。また、電子顕微鏡写真により、粒度0.03～0.05ミクロンの粒子であることを認めた。元素分析により得られた窒化硼素の純度は99.6%であつた。また、使用した硼砂に対する窒化硼素の収率は92.9%であつた。

#### 実施例2

実施例1で実施した方法において、5%塩酸の代わりに、5%硫酸を使用し、その他は実施例1と同様に実験した結果、純度99.5%、粒度0.03～0.05ミクロン、収率91.7%で非晶質窒化硼

素粉末を得た。

#### 参考例

実施例1で実施した方法において、反応後、一晚放冷し、反応生成物をビーカーに入れ、反応生成物に熱湯を加え、水洗とデカンテーションを3回繰り返し、戸別し、沈澱物を100℃で2時間減圧乾燥した結果、得られた白色粉末を元素分析し、純度88.6%の窒化硼素であることを確認した。

特許出願人 三井東圧化学株式会社